ChinaXiv合作期刊

第 51 卷 第 2 期 2015 年 2 月 第148-158页
金属学报 ACTA METALLURGICA SINICA
Vol.51 No.2 Feb. 2015 pp.148-158

球墨铸铁凝固显微组织的元胞自动机模拟*

张 蕾 赵红蕾 朱鸣芳

(东南大学江苏省先进金属材料高技术研究重点实验室, 南京 211189)

摘 要 改进了前期工作建立的多相元胞自动机(multi-phase cellular automaton, MCA)模型, 模拟以离异共晶方式凝固的球墨铸铁的显微组织演化. 在模型中采用局部溶质平衡法计算石墨和奥氏体的生长动力学, 并在石墨的生长模型中考虑石墨与Fe的密度比. 该模型可以模拟出与实验观测相符合的显微组织形貌. 应用该模型模拟分析了石墨与奥氏体的相互作用和竞争生长机制, 讨论了冷却速率对凝固结束时石墨球大小和尺寸分布的影响, 将模拟结果与实验结果进行了比较. 结果表明: 奥氏体的析出促进邻近石墨在液相中的生长; 奥氏体和石墨两相的生长受C扩散控制; 当石墨被奥氏体包围后, 生长速度减慢. 此外, 随着冷却速率的增大, 凝固时间缩短, 石墨球平均半径减小, 不同冷速条件下石墨球尺寸分布的变化规律与实验结果吻合较好.

关键词 球墨铸铁, 凝固, 离异共晶, 元胞自动机, 显微组织模拟

中图法分类号 TG161 **文献标识码** A **文章编号** 0412-1961(2015)02-0148-11

SIMULATION OF SOLIDIFICATION MICROSTRUCTURE OF SPHEROIDAL GRAPHITE CAST IRON USING A CELLULAR AUTOMATON METHOD

ZHANG Lei, ZHAO Honglei, ZHU Mingfang

Jiangsu Key Laboratory for Advanced Metallic Materials, Southeast University, Nanjing 211189

Correspondent: ZHU Mingfang, professor, Tel: (025)83793355, E-mail: zhumf@seu.edu.cn

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.51371051)

Manuscript received 2014-06-17, in revised form 2014-12-10

ABSTRACT Spheroidal graphite (SG) cast iron is characterized by the presence of spherical graphite nodules distributed in the metallic matrix. The performance of castings is primarily dependent on the solidification microstructures. In this work, a two dimensional (2D) multi-phase cellular automaton (MCA) model previously proposed by the present authors is improved to simulate the microstructure evolution of SG cast iron during divorced eutectic solidification. The present model adopts a local solutal equilibrium approach to calculate the driving force for the growth of both graphite and austenite phases. The density difference between iron and graphite is also taken into account. The diffusion of solute in the simulation domain is calculated using a finite difference method (FDM). The present model is applied to simulate the evolution of microstructure and carbon concentration field during solidification for hypereutectic SG cast irons. The results show that the present model can reasonably describe the typical features of divorced eutectic solidification, involving the independent nucleation and growth of primary graphite and austenite dendrites in liquid, the competitive growth of adjacent graphite nodules, engulfment of graphite nodules by austenite dendrites, the isotropic growth of the austenite shells that envelop the graphite nodules, the austenite to graphite eutectic phase transition controlled by carbon diffusion through the solid austenite shell, and multiple graphite nodules encapsulated in each austenite grain at the end of eutectic solidification. The simulated volume fraction and average diameter for graphite nodules are compared reasonably well with the experimental da-

*国家自然科学基金资助项目 51371051
收到初稿日期: 2014-06-17, 收到修改稿日期: 2014-12-10
作者简介: 张 蕾, 女, 1989年生, 硕士生
DOI: 10.11900/0412.1961.2014.00313

chinaXiv:202303.00504v1

ChinaXiv合作期刊

ta and level rule calculation. The interactive and competitive growth behavior between austenite dendrites and graphite nodules is studied in detail. It is found that the growth of a graphite nodule is promoted by the approaching austenite. However, after embedded by an austenite dendrite, the growth velocity of graphite decreases rapidly because of lower carbon diffusivity in austenite than that in liquid. In addition, the effect of cooling rate on the size of graphite nodules is also investigated. The results show that with cooling rate increasing, the size distribution of graphite nodules varies from two peaks to one peak, and the average diameter of nodules decreases. The simulation results compare reasonably well with the experimental data reported in literature, demonstrating the validity of the present model.

KEY WORDS spheroidal graphite cast iron, solidification, divorced eutectic, cellular automaton, microstructure modeling

球墨铸铁中的石墨为球形, 与片层状尖锐石墨相比, 不仅应力集中小, 而且在同样的石墨体积下, 球状石墨的表面积最小, 因而对基体的割裂作用也降到最小. 球墨铸铁自问世以来, 由于在力学性能、铸造性能和价格方面的优势, 在机械、冶金、汽车、矿山等工业部门得到了广泛的应用[1].

球墨铸铁的宏观力学性能与其在凝固过程中所形成显微组织密切相关, 包括石墨球形状、大小、尺寸分布以及基体组织的形貌. 工业上应用较广泛的是过共晶球墨铸铁. 在其凝固过程中, 当温度下降到石墨的液相线温度时, 初生石墨相在液相中形核并生长, 直到共晶温度, 奥氏体开始形核. 奥氏体晶核与石墨接触之前在液相中以枝晶形式生长[2]. 石墨球与奥氏体发生接触之后, 石墨球迅速被奥氏体壳包围, 并在奥氏体中继续生长. 由于C在奥氏体中扩散较慢, 石墨被奥氏体包围后生长缓慢. 同时, 奥氏体壳在液相中继续生长, 直到奥氏体壳相互接触, 最终完成凝固过程.

目前, 计算机模拟方法已经发展成为研究凝固过程中显微组织演变机理的一种有效的方法, 其中元胞自动机 (cellular automaton, CA)方法已成为该领域研究的热点. 国内外学者们提出了各种二维和三维的CA模型, 对纯扩散和对流作用下的枝晶生长、微观偏析、显微气孔的生长等凝固组织进行模拟研究[3~9]. Charbon和Rappaz[10]最早将CA方法应用到球墨铸铁凝固过程, 可视化地研究凝固过程中显微组织的演变, 他们基于C扩散控制生长, 应用经典模型模拟球铁凝固过程. 其模拟结果显示, 每个共晶晶粒中只包含一个石墨球, 这与实验观测结果不符. Ruxanda等[11]在此模型基础上考虑了初生奥氏体的影响, 并假设石墨与奥氏体接触之后才开始生长, 对亚共晶球墨铸铁的凝固过程进行模拟, 模拟结果中每个奥氏体晶粒包含多个石墨. 但该模型没有考虑石墨在液相中的生长, 且计算生长动力学时根据平衡相图确定界面浓度, 没有耦合实时浓度场计算.

Burbelco等[12~14]应用连续形核模型, 将动力学过冷作为生长驱动力, 模拟了球墨铸铁凝固过程奥氏体和石墨的形核与生长. 模拟结果显示了与实验观测相符的不规则圆形石墨形貌, 以及凝固过程的冷却曲线. 但该模型没有针对冷却速率等工艺因素对凝固显微组织的影响规律开展研究, 并且模型中没有考虑对于凝固组织的形成有着重要影响的石墨与Fe两相的密度比.

本课题组前期工作[15,16]依据Zhu和Stefanescu[17]提出的基于局部溶质平衡的模型, 以C扩散作为奥氏体和石墨生长的驱动力, 提出了针对球墨铸铁凝固过程中球状石墨和奥氏体枝晶的形核和生长的多相CA模型. 由于在石墨生长的模型中人为地将石墨界面的C成分进行平均化处理, 模拟结果中石墨呈现规整的球形. 模型中没有考虑到石墨与Fe的密度比, 使得模拟结果中石墨体积分数和平均半径均低于实验测量的数据.

本工作在前期工作的基础上, 将多相元胞自动机(multi-phase cellular automaton, MCA)模型作了改进, 在石墨的生长动力学中采用石墨界面实际的局部C浓度进行计算, 并考虑了石墨与Fe的密度比, 模拟了过共晶球墨铸铁凝固过程中显微组织形貌与区域浓度场的变化, 分析了石墨与奥氏体的相互作用和竞争生长机理. 应用该模型模拟研究了冷却速率对于凝固显微组织中石墨球的尺寸分布以及平均半径的影响规律.

1 模型与算法

1.1 模型描述

本工作主要研究过共晶球墨铸铁以离异共晶方式凝固时球状石墨与奥氏体两相之间的相互作用与竞争机制以及浓度场的变化规律. 将二维的计算区域剖分成均匀的正方形网格, 在液相、奥氏体

chinaXiv:202303.00504v1

ChinaXiv合作期刊

相和石墨相三相系统中, 每个网格被赋予浓度、温度、3个相(液相、奥氏体和石墨)的体积分数、奥氏体枝晶的择优取向、石墨球标号等变量, 并标明元胞的状态: 液相(f_L=1), 石墨相(f_{Gr}=1), 奥氏体相(f_γ=1), 石墨/液相界面(0<f_{Gr}<1, f_γ=0), 石墨/奥氏体界面(0<f_{Gr}<1, f_L=0), 奥氏体/液相界面(0<f_γ<1, f_{Gr}=0), 石墨/奥氏体/液相界面(f_{Gr}>0, f_γ>0, f_{Gr}+f_γ<1), 其中f_L , f_{Gr}和f_γ分别代表液相、石墨和奥氏体的相分数.

模拟开始时, 首先将区域内网格初始化, 使所有网格具有相同的成分和温度, 本工作中温度计算从初始成分所对应的液相线温度开始. 对于过共晶球墨铸铁, 当区域温度低于石墨液相线温度时, 石墨从液相中析出, 并以近似球状长大. 当温度降至共晶温度, 奥氏体析出并和石墨相一起以离异共晶方式生长. 石墨和奥氏体的形核密度根据文献[18]的形核模型或相关的实验数据确定. 石墨和奥氏体形核后位置固定, 不考虑流场而造成石墨的上浮作用. 在凝固过程中, 当石墨与奥氏体相接触时, 石墨迅速被奥氏体壳包围. 随后, 石墨通过周围奥氏体壳吸收溶质C继续生长, 直到共析温度模拟结束. 奥氏体生长过程中不断向周围液相中排出溶质C, 直至奥氏体壳相互接触, 完成凝固. 本模型不考虑流动对溶质传输的影响, C溶质的传输通过纯扩散实现. 假设计算区域内温度均匀分布, 并以一定的冷却速率冷却. 凝固过程中的冷却速率受到散热速率、石墨与奥氏体生长过程中释放的潜热两方面作用的共同影响.

本工作采用基于局部溶质平衡模型[17]计算石墨与奥氏体的生长, 两相的生长驱动力为界面平衡成分与实际成分的差值相关的函数. 其中局部界面平衡成分根据界面局部温度和界面曲率计算得到, 而实际成分由浓度场计算获得. 此外, 本模型在计算两相的生长时考虑了石墨与Fe的密度比.

1.2 浓度场和温度场计算

假设在奥氏体/液相、石墨/液相和石墨/奥氏体界面上的溶质平衡. 一方面, 奥氏体在生长过程中向周围液相排出溶质, 固/液界面的溶质再分配的计算如下:

$$C_\gamma^* = k_\gamma C_L^* \tag{1}$$

式中, k_γ为奥氏体/液相界面溶质平衡分配系数, C_γ^*和C_L^*分别为奥氏体/液相界面处奥氏体和液相的成分. 另一方面, 石墨在生长过程中从周围的液相或者奥氏体相中吸收溶质C. 两者的共同作用使得生长界面前沿存在浓度梯度, 引起溶质C的扩散. 因此, 考虑了溶质再分配的溶质传输控制方程为:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = \nabla\cdot\left(D_i \nabla C_i\right) + C_L^*(1-k_\gamma)\frac{\partial f_\gamma}{\partial t} + (C_{int}^* - C_{Gr})\frac{\partial f_{Gr}}{\partial t} \tag{2}$$

式中, t是时间, C_i是成分, D_i是扩散系数, 下标i表示奥氏体相γ或者液相L; C_{int}^*为石墨生长时石墨/奥氏体界面中奥氏体相的成分, 或者石墨/液相界面和石墨/奥氏体/液相界面中的液相成分; C_{Gr}为石墨的C含量(C_{Gr}=100%). 等式右边第二项表示奥氏体相生长时在奥氏体/液相或奥氏体/石墨/液相界面产生的溶质再分配. 其处理方法为: 将奥氏体生长所释放的溶质添加到相同界面网格的剩余液相中. 如果该界面网格在该时间步时已完全凝固, 则将所释放的溶质添加到与其相邻的液相网格中. 等式右边第三项为石墨生长时在石墨/液相、石墨/奥氏体或石墨/奥氏体/液相界面产生的溶质再分配. 其处理方法为: 将石墨生长所吸收的溶质从相同界面网格的剩余液相或奥氏体相中减去相应的溶质量. 如果该界面网格在该时间步时已完全转变成石墨, 则将所吸收的溶质从与其相邻的液相或奥氏体网格中减去相应的溶质量.

在模拟体系中包含了液相、石墨和奥氏体3个不同的相, 以及奥氏体/液相、石墨/液相、石墨/奥氏体和石墨/奥氏体/液相4种不同的界面. 在不同的相和界面处的C成分和C扩散系数差别是很大的. 为了有效合理地处理C成分和扩散系数在界面处的不连续问题, 在处理溶质扩散时, 采用等效成分C_e和等效扩散系数D_e求解式(2). 例如, 液相和奥氏体的等效成分分别为C_e=C_L和C_e=C_γ/k_γ; 液相和奥氏体的等效扩散系数分别为D_e=D_L和D_e=D_γ; 石墨相中及其与之相邻各相之间的等效扩散系数为C_e=0. 这是因为石墨相的平衡成分是100%C. 虽然与其周围的液相或奥氏体相之间的浓度相差很大, 但根据相平衡原理, 它们之间的化学位是相等的. 因此, 在与石墨相邻的界面处不会发生C从石墨到液相或奥氏体的扩散. 计算区域中网格的种类和不同种类网格中的平衡浓度与扩散系数的详细确定方法如文献[19]所述.

采用显示格式的有限差分法和无扩散边界条件对式(2)进行离散和求解, 稳态的时间步长Δt由C在液相中的扩散系数和网格尺寸Δx确定:

$$\Delta t = \Delta x^2 / (4.5 D_L) \tag{3}$$

在凝固过程中, 一方面铸件通过铸型与外界发生热交换, 引起体系温度的下降, 为凝固提供驱动

chinaXiv:202303.00504v1

ChinaXiv合作期刊

力; 另一方面, 凝固过程伴随着相变潜热的释放,引起温度的回升. 这两方面的共同作用使得体系的温度随着凝固时间而变化. 此外, 不同温度下铸件内各点的位置和状态也会存在差异. 不过, 由于本工作的模拟区域比较小, 并且Fe-C合金的热扩散系数比溶质C在液相中的扩散系数大约3个数量级, 所以, 本模型假设在一个微观区域内热扩散能够充分进行, 计算区域内温度均匀, 区域中温度受散热速率与潜热释放两方面共同作用, 区域中温度T的计算公式为:

$$\frac{\partial T}{\partial t}=\dot{T}+\frac{L_{V,\gamma}}{\rho_{Fe}c_p}\cdot\frac{\partial f_\gamma}{\partial t}+\frac{L_{V,Gr}}{\rho_{Fe}c_p}\cdot\frac{\partial f_{Gr}}{\partial t} \tag{4}$$

式中, $\dot{T}$ 表示散热速率, 指的是铸件通过铸型与外界发生热交换, 引起体系温度下降的速率, 可根据发生相变前和相变结束后的冷却曲线拟合确定; ρ_{Fe}为Fe的密度; c_p为Fe的比热容; $L_{V,Gr}$ 和 $L_{V,\gamma}$ 分别为石墨与Fe的体积潜热.

1.3 石墨生长模型

球墨铸铁凝固过程中, 石墨的生长分为在液相中生长和被奥氏体包围后在奥氏体壳中生长2个阶段. 如前文所述, 本工作采用基于局部溶质平衡模型[17]计算石墨的生长, 生长驱动力为局部界面平衡成分与实际成分之差. 当石墨在液相中生长时, 需要考虑界面曲率的影响, 石墨/液相界面的平衡成分$C^{eq}_{Gr/L}$ 按下式进行计算:

$$C^{eq}_{Gr/L}=C_0+\frac{T^*-T^{eq}_{Gr/L}}{m_{L,Gr}}+\frac{\Gamma_{Gr}K_{Gr/L}}{m_{L,Gr}} \tag{5}$$

式中, T^*为界面温度, $T^{eq}_{Gr/L}$ 为初始成分C_0所对应的界面平衡温度, $m_{L,Gr}$为石墨液相线斜率, $K_{Gr/L}$为石墨/液相界面的界面曲率, Γ_{Gr}为石墨的Gibbs-Thomson系数. 在本工作的2D模型中, 石墨界面平均曲率由下式计算:

$$K_{Gr/L}=\sqrt{\frac{\pi}{V_C\sum f_{Gr}}} \tag{6}$$

式中, V_C为每个元胞的面积, $\sum f_{Gr}$ 为属于同一个石墨的石墨体积分数总和.

根据界面溶质守恒, 并考虑石墨和Fe之间的密度差, 在一个时间步长内, 石墨/液相界面网格的石墨体积分数增量Δf_{Gr}为:

$$\Delta f_{Gr}=G_{Gr}\cdot\frac{\rho_{Fe}}{\rho_{Gr}}\cdot\frac{(C^*_{Gr/L}-C^{eq}_{Gr/L})}{(C_{Gr}-C^{eq}_{Gr/L})} \tag{7}$$

式中, ρ_{Gr} 为石墨的密度; $C^*_{Gr/L}$ 为石墨/液相界面的成分, 通过浓度场计算获得; G_{Gr}为与邻位网格状态相关的几何因子, 由下式确定:

$$\begin{cases}G_{Gr}=\min\left[1,\frac{1}{2}\left(\sum_{m=1}^{4}S^{I}_{m}+\frac{1}{\sqrt{2}}\sum_{m=1}^{4}S^{II}_{m}\right)\right]\\ S^{I},S^{II}=\begin{cases}0 & (f_{Gr}<1)\\ 1 & (f_{Gr}=1)\end{cases}\end{cases} \tag{8}$$

式中, S^I为最邻近的4个网格的状态参数; S^{II}为次近邻的4个网格的状态参数. 几何因子G_{Gr}考虑了邻位的石墨相网格数对该网格的石墨相增长的影响, 同时还考虑了邻位网格的影响程度与网格间距有关, 即最近邻网格比次近邻的网格的影响更大.

当石墨在奥氏体中生长时, 只需将式(5)中 $T^{eq}_{Gr/L}$ 和 $m_{L,Gr}$ 分别换成石墨/奥氏体界面的平衡温度 $T^{eq}_{Gr/\gamma}$ 和石墨的固相线斜率 $m_{s,Gr}$, 并且忽略界面曲率的作用, 其余均与石墨在液相中生长的计算方法相同. 因此, 石墨/奥氏体界面的平衡成分 $C^{eq}_{Gr/\gamma}$ 为:

$$C^{eq}_{Gr/\gamma}=C_0+\frac{T^*-T^{eq}_{Gr/\gamma}}{m_{s,Gr}} \tag{9}$$

与式(7)的计算方法类似, 一个时间步长内, 石墨/奥氏体界面的石墨体积分数增量Δf_{Gr}为:

$$\Delta f_{Gr}=G_{Gr}\cdot\frac{\rho_{Fe}}{\rho_{Gr}}\cdot\frac{(\bar{C}^*_{Gr/\gamma}-C^{eq}_{Gr/\gamma})}{(C_{Gr}-C^{eq}_{Gr/\gamma})} \tag{10}$$

式中, $\bar{C}^*_{Gr/\gamma}$ 为石墨/奥氏体界面的奥氏体的局部平均成分. 对于石墨/奥氏体的界面元胞I, 其局部平均成分可按下式计算:

$$\bar{C}^*_{Gr/\gamma}(I)=\frac{C^*_{Gr/\gamma}(I)+\sum_{J=1}^{N}C^*_{Gr/\gamma}(J)}{N+1} \tag{11}$$

式中, $C^*_{Gr/\gamma}(I)$ 为界面元胞I的奥氏体相成分, $\sum_{J=1}^{N}C^*_{Gr/\gamma}(J)$ 为元胞I的邻位界面元胞的奥氏体相成分之和, N为邻位界面元胞的个数. 局部的奥氏体成分 $C^*_{Gr/\gamma}(I)$ 和 $C^*_{Gr/\gamma}(J)$ 由浓度场计算获得.

当石墨/液相界面或者石墨/奥氏体界面元胞的石墨体积分数达到1时, 该元胞状态即从石墨/液相界面或者石墨/奥氏体相界面元胞转变成石墨, 并且捕捉其周围新的石墨/液相界面元胞和石墨/奥氏体相界面元胞, 从而使该石墨得以继续生长.

1.4 奥氏体生长模型

本工作同样采用局部溶质平衡法[17]计算奥氏体枝晶的生长动力学, 考虑了枝晶的择优生长方向,

chinaXiv:202303.00504v1

ChinaXiv合作期刊

界面曲率变化以及界面能和生长动力学的各向异性. 枝晶生长的驱动力是枝晶/液相界面实际成分与平衡成分之差, 在液相中生长时枝晶界面平衡成分的 $C^{eq}_{\gamma/L}$ 计算方法如下:

$$C^{eq}_{\gamma/L} = C_0 + \frac{T^* - T^{eq}_{\gamma/L}}{m_{L,\gamma}} + \frac{\Gamma_\gamma \cdot K_\gamma \cdot f_1(\theta,\theta_0)}{m_{L,\gamma}} \tag{12}$$

式中, $T^{eq}_{\gamma/L}$ 为奥氏体/液相界面的平衡温度; $m_{L,\gamma}$为奥氏体的液相线斜率; Γ_γ为奥氏体的Gibbs-Thomson系数; K_γ 为奥氏体/液相界面曲率, 通过计数格子法[20]计算获得; $f_1(\theta,\theta_0)$ 为界面能各向异性函数, 由下式进行计算:

$$\begin{cases} f_1(\theta,\theta_0) = 1 - \delta_t \cos\left[4(\theta - \theta_0)\right] \\ \theta = \arccos\left(\dfrac{\partial f_\gamma/\partial x}{((\partial f_\gamma/\partial x)^2 + (\partial f_\gamma/\partial y)^2)^{1/2}}\right) \end{cases} \tag{13}$$

式中, δ_t是界面能各向异性强度, θ_0 是枝晶的择优生长方向.

根据界面溶质平衡, 在一个时间步长内, 奥氏体/液相界面元胞的奥氏体体积分数增量Δf_γ为:

$$\Delta f_\gamma = G_\gamma \cdot f_2(\theta,\theta_0) \cdot \frac{\left(C^{eq}_{\gamma/L} - C^*_{\gamma/L}\right)}{\left(C^{eq}_{\gamma/L}(1 - k_\gamma)\right)} \tag{14}$$

式中, $C^{eq}_{\gamma/L}$ 为根据式(12)计算的奥氏体/液相界面的平衡成分; $C^*_{\gamma/L}$ 为由浓度场计算获得的奥氏体/液相界面的实际成分; G_γ为几何因子, 计算方法与式(8)相似, 只需把式(8)中的石墨体积分数换成奥氏体体积分数; $f_2(\theta,\theta_0)$ 为界面动力学各向异性函数, 计算方法如下:

$$f_2(\theta,\theta_0) = 1 + \delta_k \cos\left[4(\theta - \theta_0)\right] \tag{15}$$

式中, δ_k 是界面动力学各向异性强度.

当奥氏体/液相界面元胞的奥氏体体积分数达到1时, 该元胞的状态由奥氏体/液相界面元胞转变成奥氏体元胞, 并捕捉周围的液相元胞为新的奥氏体/液相界面元胞, 使得奥氏体在下一个时间步长内继续生长. 当石墨在奥氏体中生长时, 一个时间步长内, 石墨/奥氏体界面元胞中石墨体积分数增量等于奥氏体相减少的量.

1.5 石墨与奥氏体枝晶生长模型的耦合

将石墨与奥氏体相的形核、生长与浓度场和温度场计算相耦合的方法如下: 模拟开始时, 首先把计算区域内所有网格初始化, 使其具有相同的初始浓度和温度. 然后根据散热速率计算区域以一定的冷却速率冷却, 根据不同的实时温度判断是否符合石墨与奥氏体的形核条件, 如果符合, 石墨或奥氏体开始形核, 赋予这些形核元胞相应的状态值. 这时存在多种不同的界面, 当奥氏体相生长时, 根据式(12)~(15)计算奥氏体相分数的增量. 石墨在液相中和奥氏体相中的生长分别根据式(5)~(8)和(9)~(11)计算. C溶质扩散和由于相变造成的溶质再分配根据式(1)和(2)进行计算. 如前所述, 本模型考虑了石墨与Fe的密度比. 为了使整个计算区域中的溶质守恒, 在石墨生长后进行溶质再分配时, 用等效的石墨C溶度($C^E_{Gr} = 100\% \times \left(\rho_{Gr}/\rho_{Fe}\right)$)进行计算. 由于CA方法中对于溶质再分配的处理会造成局部溶质分配的误差, 每个时间步长对区域内溶质的总量进行统计和补偿, 随后计算整个区域内溶质C的扩散. 如前文所述, 散热速率的作用使区域温度下降, 而石墨和奥氏体的析出伴随着潜热的释放, 引起区域内温度升高, 两者的共同作用对区域温度的影响用式(4)进行计算. 温度场和浓度场的变化又会影响石墨与奥氏体的形核和生长, 并开始新一轮循环. 所以, 本模型包含了一个耦合浓度场和温度场计算、石墨与奥氏体形核、生长以及相互作用过程的球墨铸铁离异共晶凝固显微组织演变的物理机制. 本工作计算所采用的Fe-C合金的物性参数见表1[19].

2 结果与讨论

2.1 过共晶球墨铸铁凝固显微组织演变

在本工作中, 为了将部分模拟结果和实验结果相比较, 用C当量来考虑Si元素的作用. C当量用式 $C^E = \%C + 0.3\%Si$ [21]进行计算. 图1为模拟的C当量在 C_0=4.71% (质量分数)的球墨铸铁凝固显微组织和浓度场的演化过程. 计算区域由200×200个网格组成, 网格尺寸为2 μm. 为了与实验照片进行更好地比较, 针对图1的模拟时, 区域内部分石墨与奥氏体的形核位置人为设定. 初始温度为C_0成分所对应的石墨液相线温度1357 ℃. 当Fe液温度低于石墨的液相线温度后, 随着温度的下降石墨不断从液相中析出, 当温度达到共晶温度 T_{eut}时, 奥氏体开始析出. Fe液在温度高于(T_{eut}−10) ℃时的散热速率为−4.6exp(−0.0031t), 在该温度以下的散热速率为1 ℃/s. 温度场受到散热速率和石墨与奥氏体凝固过程中放出的潜热共同影响. 图1中的数字为局部C浓度. 可以看出, 凝固开始时, 石墨作为初生相在液相中形核生长. 石墨的生长吸收溶质C. 所以, 使区域内C浓度低于初始成分 C_0=4.71%, 并且石墨周

chinaXiv:202303.00504v1

ChinaXiv合作期刊

chinaXiv:202303.00504v1

表 1 本工作计算所采用的物性参数[19]

Table 1 Physical properties used in the simulation[19]

Parameter	Value	Unit
Partition coefficient k_γ	0.49	
Liquidus slope of graphite $m_{L,Gr}$	470	K·%$^{-1}$
Solidus slope of graphite $m_{s,Gr}$	284.8	K·%$^{-1}$
Liquidus slope of austenite $m_{L,\gamma}$	−90	K·%$^{-1}$
Eutectic temperature T_{eut}	1153.7+4.865×%Si	℃
Eutectic composition C_{eut}	4.28	%
Gibbs-Thomson coefficient of graphite Γ_{Gr}	1.9×10^{-7}	m·K
Gibbs-Thomson coefficient of austenite Γ_γ	3.7×10^{-7}	m·K
Specific heat of liquid c_p	880	J·kg^{-1}·K^{-1}
Volume latent heat of austenite $L_{V,\gamma}$	1.82×10^9	J·m^{-3}
Volume latent heat of graphite $L_{V,Gr}$	3.60×10^9	J·m^{-3}
Diffusion coefficient in austenite D_γ	1.5×10^{-10} ($T>(T_{eut}-200)$ ℃) $1.5\times10^{-10}\exp(-142100/8.314T)$ ($T\leqslant(T_{eut}-200)$ ℃)	m^2·s^{-1}
Diffusion coefficient in liquid D_L	5.0×10^{-9}	m^2·s^{-1}
Degree of the surface energy anisotropy δ_t	0.6	
Degree of the kinetic anisotropy δ_k	0.6	
Density of graphite ρ_{Gr}	2100	kg·m^{-3}
Density of iron ρ_{Fe}	7930	kg·m^{-3}

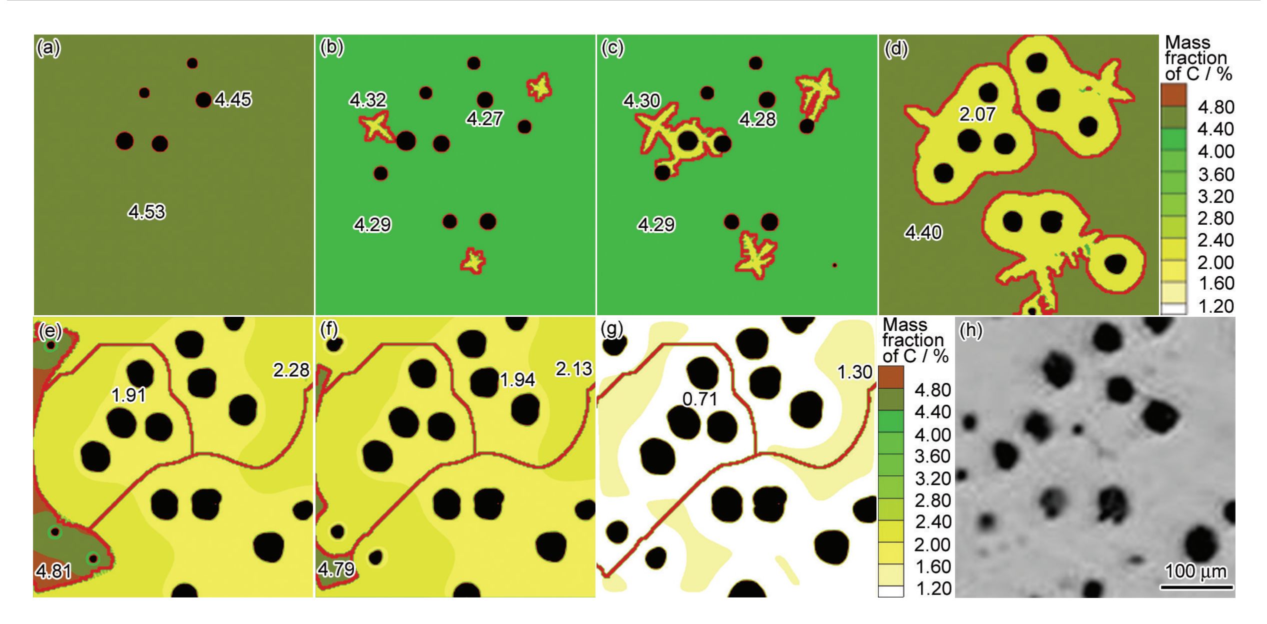


图 1 不同温度下初始成分 C_0=4.71%时过共晶球墨铸铁的形貌演变

Fig.1 Simulated and experimental morphologies for a hypereutectic spheroidal graphite (SG) cast iron with an initial concentration C_0=4.71% at T=1253 ℃ with f_s=1% (a), T=1163 ℃ with f_s=3% (b), T=1165 ℃ with f_s=6% (c), T=1156 ℃ with f_s=35% (d), T=1117 ℃ with f_s=91% (e), T=1123 ℃ with f_s=97% (f), T=740 ℃ with f_s=100% (g) and experiment result of Fe-3.86%C-2.82%Si[22] (h) (Numbers in the figures show the local carbon concentration, and f_s is the total solid fraction)

ChinaXiv合作期刊

围C浓度略低于远离石墨的区域(图1a). 当温度降至共晶温度时, 奥氏体开始形核, 此时区域内的浓度接近共晶成分 C_{eut}=4.28%, 并且奥氏体附近的液相中C成分略高, 而石墨附近液相中的C成分略低(图1b). 当石墨与奥氏体接触时, 石墨迅速被奥氏体所包围(图1c), 之后奥氏体逐渐从枝晶状转变为团状生长, 溶质C从液相经过奥氏体壳传输到石墨周围, 使石墨在奥氏体内继续生长. 当大多数石墨被奥氏体包裹后, 液相中的C浓度逐渐升高(图1d~e). 这是因为奥氏体生长过程中排出溶质C, 而C在奥氏体内的扩散系数远小于其在液相中的扩散系数. 所以, 奥氏体排出的溶质大多进入液相中, 使得液相浓度升高. 凝固末期, 奥氏体壳相互接触, 凝固结束, 每个奥氏体晶粒中包含多个石墨. 之后温度继续下降, 由于奥氏体内浓度不均匀, 石墨通过吸收奥氏体内的C继续长大, 并且石墨/奥氏体界面的浓度低于远离石墨区域内浓度(图1g). 对比740 ℃时的模拟结果(图1g)与实验照片(图1h)[22]可以看出, 本模型可以模拟出与实验观察比较吻合的球铁显微组织形貌.

图2是凝固过程中固相分数、奥氏体和石墨体积分数随温度变化的曲线. 可以看到, 共晶温度之前, 石墨在液相中生长, 石墨体积分数增长. 当温度达到共晶温度时, 奥氏体形成, 固相分数、奥氏体和石墨体积分数迅速增长, 说明凝固过程主要在共晶阶段完成. 当固相体积分数达到100%后, 石墨体积分数继续缓慢增加, 奥氏体体积分数减少, 说明凝固结束后, 存在奥氏体相向石墨相的转变.

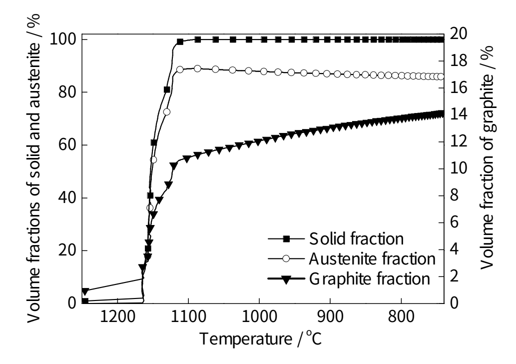


图2 固相、奥氏体和石墨体积分数随温度的变化

Fig.2 Volume fractions of solid, austenite and graphite vary with temperature for a hypereutectic SG cast iron with C_0= 4.71%

表2将温度冷却至740 ℃时的模拟结果(图1g)中的石墨体积分数和平均半径与实验结果(图1h)以及根据平衡相图的杠杆定律计算值进行了比较. 模拟结果中的石墨分数和平均半径采用程序计算和Imagetool软件2种方法测得, 实验照片中的石墨体积分数和平均半径由Imagetool软件测得. 从表2可以看出, 关于模拟的结果, 用程序计算和Imagetool测量的数值非常接近. 模拟的石墨体积分数略低于用杠杆定律计算的结果. 这是因为杠杆定律是基于完全平衡的相变过程, 而CA模拟包含了凝固过程非平衡的动力学因素; 另一方面, 模拟值又略高于实验结果, 这是因为实验是一个三维空间, 图1h区域内的石墨不一定为石墨球最大的横截面. 而模拟是在二维区域进行的. 综合这两方面的比较, 可以得出本模型的模拟结果是合理的.

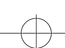
2.2 石墨与奥氏体相互作用机理

为了研究凝固过程中石墨与奥氏体之间相互作用与竞争生长的机理, 本工作模拟了 C_0=4.65%过共晶球墨铸铁的凝固过程. 设定区域内4个石墨和一个奥氏体枝晶的位置, 模拟区域为200×200个网格, 网格尺寸为2 μm. 初始温度为该成分所对应的石墨液相线温度1329 ℃, 并以3 ℃/s的速率进行冷却, 直到温度降至(T_{eut}−10) ℃, 随后设温度为恒定. 图3为模拟的石墨与奥氏体形貌的演化以及浓度场的变化. 由图3可以看出, 在凝固开始阶段, 当温度低于石墨液相线温度时, 石墨在液相中形核, 随着石墨生长吸收溶质C, 其周围液相的C浓度低于远离石墨的液相区域. 并且石墨II和III周围的浓度略低于石墨I (图3a), 这是因为石墨II和III共同消耗近邻区域内的溶质C, 使得附近区域的C浓度

表2 模拟的石墨体积分数和平均半径与杠杆定律计算值以及实验值的比较

Table 2 Comparisons of simulation, lever rule and experiment for the graphite volume fraction and average radius of a hypereutectic SG cast iron with C_0=4.71%

Method	Graphite volume fraction / %	Average radius / μm
Simulation result of program calculation	14.16	21.24
Simulation result of Imagetool measurement	14.10	21.19
Lever rule calculation	14.59	21.55
Experimental result of Imagetool measurement[22]	11.44	18.52



chinaXiv:202303.00504v1

ChinaXiv合作期刊

较低. 随着温度降低至共晶温度, 奥氏体形核(图3b). 在奥氏体生长过程中先包围与其较近的I号石墨, 接着包围II和III号石墨, 形成奥氏体壳, 并继续生长. 由于奥氏体生长过程中排出溶质C, 而石墨的生长吸收溶质C, 使得奥氏体周围区域的C浓度高于石墨周围的浓度(图3b~g).

凝固过程中石墨的生长速度和半径随时间的变化如图4所示, 其中生长速度通过石墨平均半径的增长速度计算获得. 从图4a中可以看出, 凝固开始阶段, 3个石墨的生长速度都较快. 随着石墨在液相中生长吸收溶质C, 使得液相中的C浓度快速下降, 石墨周围形成浓度梯度. 根据式(7), 石墨界面C浓度的降低导致石墨生长速度减慢, 随后达到相对稳定的生长速度(图4a), 这是因为此时石墨周围浓度基本保持不变(图3b~d). 从凝固开始到11 s之前, 石墨I周围的浓度略高于石墨II和III (图3a~c), 所以其生长速度略快于其他2个石墨. 然后, 奥氏体开始包围石墨I (图3d), 奥氏体生长时排出的溶质促进了石墨I的生长, 使石墨I的生长速度明显加快. 当石墨I完全被奥氏体包裹之后, 石墨I的生长速度迅速减慢至低于II号石墨的生长速度, 并趋于一个相对稳定值. 这是因为石墨在奥氏体中生长时必须通过奥氏体壳吸收溶质, C在奥氏体中的扩散速度较慢, 使得被奥氏体完全包裹后的石墨I的生长速度减慢. 而此刻石墨II仍在液相中生长, 所以其生长速度快于石墨I. 随着凝固的进行, 奥氏体逐渐接近石墨II和III, 这2个石墨在与奥氏体接触和相互作用时的生长速度变化规律与石墨I的情况类似. 当其被奥氏体接近和包围时, 生长速度明显加快, 被完全包围之后, 生长速度迅速减慢至一个相对稳态

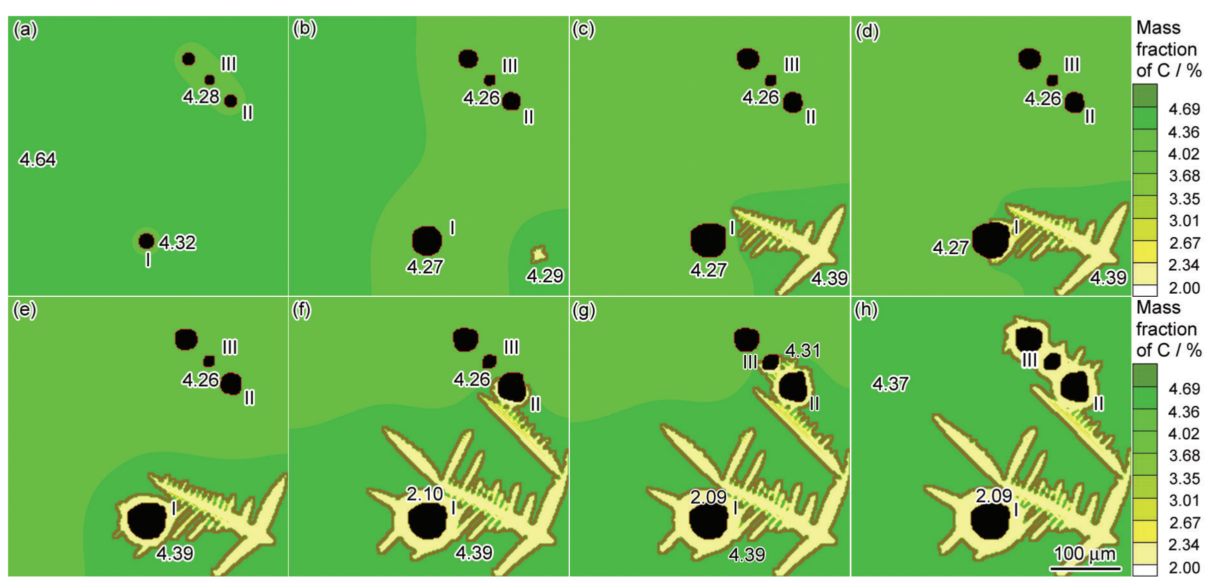


图3 模拟的C_0=4.65% 过共晶球墨铸铁凝固过程中石墨与奥氏体相互作用与竞争生长

Fig.3 Interactive and competitive growth between austenite dendrite and graphite nodules for a hypereutectic SG cast iron of C_0=4.65% at solidification times of 1 s (a), 6 s (b), 11 s (c), 12 s (d), 13 s (e), 19 s (f), 20 s (g) and 22 s (h) (Numbers in the figures show the local carbon concentration)

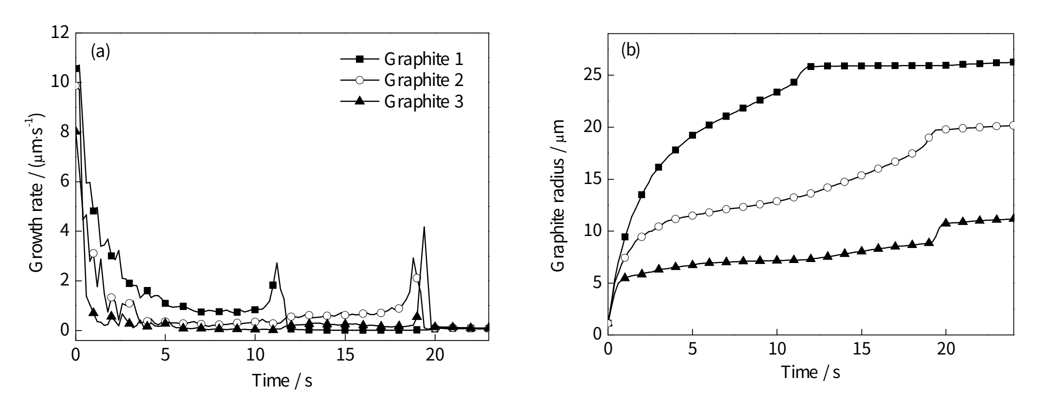


图4 在图3中I, II和III号石墨的生长速度和半径随凝固时间的变化

Fig.4 Time evolution of growth rate (a) and radius (b) of nodules I, II and III in Fig.3

chinaXiv:202303.00504v1

ChinaXiv合作期刊

值. 从图4b中可以看出, 在凝固开始时, 3个石墨的半径接近, 随着凝固的进行, 石墨I的半径大于其他2个石墨, 当3个石墨分别被奥氏体包围时, 其半径变化规律与生长速率的变化规律相类似. 此外, 在整个凝固过程中, 石墨III的生长速度和半径小于其他2个石墨, 这是因为该石墨受到周围2个石墨的影响, 因此, 最终石墨III的尺寸最小, 并呈现出椭圆形的形貌.

2.3 冷却速率对球墨铸铁凝固过程的影响

在实际的凝固过程中, 对于成分一定的球墨铸铁, 不同的冷却速率会影响石墨球的尺寸和尺寸分布, 从而影响铸件的宏观性能. 本工作模拟分析了冷却速率对 C_0=4.31%的球墨铸铁凝固组织中石墨球尺寸的影响. 模拟区域和网格尺寸与图3相同. 石墨个数由文献[23]中的实验测量数据确定, 并采用公式 $N_A=(N_V/2.37)^{2/3}$ 将3D的石墨个数转换成2D区域内的个数, 其中 N_A 和 N_V 分别为单位面积和单位体积的石墨个数. 此外, 文献[23]认为直径小于5 μm的颗粒多为夹杂物和微孔. 因此, 本工作在从文献[23]的数据计算石墨个数时没有把直径小于5 μm范围内的颗粒数目计算在内, 由此得到的4和1.5 mm壁厚条件下石墨球的形核密度分别约为700和1400 mm^{-2}. 单位面积奥氏体枝晶个数 $N_{A\gamma}$ 根据文献[18]中形核模型公式 $N_{A\gamma}=4.81\times10^7+5.33\times10^{-6}(\mathrm{d}T/\mathrm{d}t)+8.7\times10^4(\mathrm{d}T/\mathrm{d}t)^2$ 计算得到. 由于文献[23]中没有给出不同壁厚所对应的冷却速率, 本工作模拟过程中的散热速率根据文献[24]中的实验值确定, 4和1.5 mm壁厚的球墨铸铁凝固时的散热速率分别为16和21 ℃/s, 区域中的冷却速率受到散热速率和石墨与奥氏体析出释放的潜热共同影响. 根据随着冷却速率增大, 石墨和奥氏体形核时的过冷度增大的实验现象[24], 对于4 mm壁厚的球墨铸铁, 模拟时初始温度设为初始成分所对应的石墨液相线温度 T_{liqu}, 并伴随着初生石墨在液相中形核. 当区域温度降至(T_{eut}−15) ℃时, 奥氏体形核. 当温度进一步降至(T_{eut}−35) ℃时, 共晶石墨形核. 对于1.5 mm壁厚的球墨铸铁, 初生石墨、奥氏体和共晶石墨的形核温度分别为(T_{liqu}−20), (T_{eut}−25)和(T_{eut}−45) ℃. 石墨与奥氏体的形核位置随机确定. 图5和6分别为 C_0= 4.31%的球墨铸铁在不同散热速率条件下石墨的尺寸分布和形貌图. 可以看出, 随着冷却速率增大, 石墨球个数增多, 石墨尺寸分布的峰值更为明显, 并且峰值从右向左向着石墨半径较小的区域移动, 石墨球的最大直径也有所减小. 这说明随着冷速增加, 大多数石墨球的半径减小. 当冷却速率较小时, 石墨的尺寸分布呈现出2个峰值, 这是由于初生石墨和共晶石墨的两步形核机理引起的. 而随着冷却速率的增大, 石墨两步形核之间的时间缩短, 初生石墨在共晶石墨形成之前的生长有限, 从而形成单一峰值的尺寸分布特征. 将图5和6的模拟结果与文献[23]报道的实验数据进行比较, 模拟和实验得到的石墨尺寸分布与形貌随着冷却速率变化的规律相符合.

为了进一步研究冷却速率对石墨球平均半径的影响, 在图5的基础上增加了3和2 mm壁厚条件下的模拟. 单位面积石墨与奥氏体个数的计算方法与图5的相同, 3和2 mm壁厚时石墨形核密度分别为880和1160 mm^{-2}, 散热速率分别取18和20 ℃/s. 3 mm壁厚条件下, 初生石墨、奥氏体和共晶石墨的形核温度分别为(T_{liqu}−8), (T_{eut}−19)和(T_{eut}−39) ℃. 2 mm壁厚时, 初生石墨、奥氏体和共晶石墨的形核温度分别为(T_{liqu}−16), (T_{eut}−23)和(T_{eut}−43) ℃. 其他模拟条件均与图5相同. 图7是模拟的石墨平均半径与凝固时间的关系. 可以看出, 随着凝固时间缩短, 石墨的平均半径减小. 因为凝固时间越短, 意味着冷却速率

(a)
Nodule count / mm^{-2}
40×10
30×10
20×10
10×10
0
0 10 20 30
Nodule diameter / μm

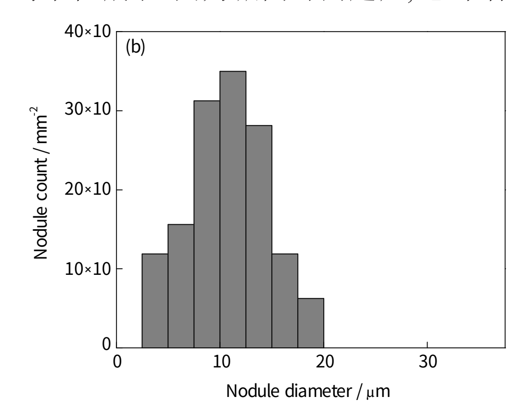


图5 模拟的 C_0=4.31%的球墨铸铁在740 ℃时石墨尺寸分布随散热速率的变化

Fig.5 Simulated nodule size distribution for a SG iron of C_0=4.31% at 740 ℃ with extraction rates of 16 ℃/s for 4 mm plate (a) and 21 ℃/s for 1.5 mm plate (b)

chinaXiv:202303.00504v1

ChinaXiv合作期刊

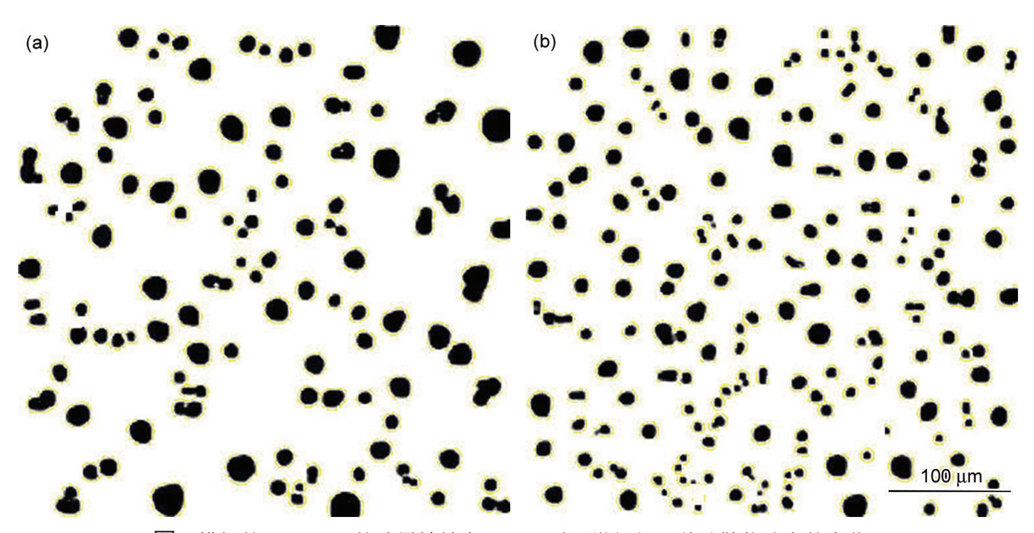


图 6 模拟的 C_0=4.31%的球墨铸铁在 740 ℃时显微组织形貌随散热速率的变化

Fig.6 Simulated microstructures for a SG cast iron of C_0=4.31% with heat extraction rates of 16 ℃/s (a) and 21 ℃/s (b)

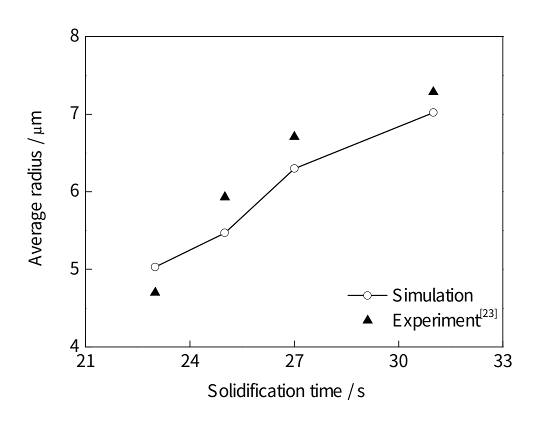


图 7 模拟和实验[23]的 C_0=4.31% (Fe-3.57%C-2.64%Si)的球墨铸铁石墨平均半径与凝固时间的关系

Fig.7 Comparison of the average graphite radius as a function of solidification time between simulation (C_0=4.31%) and experiment (Fe-3.57%C-2.64%Si)[23] results

越大, 形成的石墨个数越多, 而对于初始成分一定的球墨铸铁, 凝固结束时石墨的体积分数变化不大. 因此, 冷却速率越大, 最终的石墨球平均半径越小. 从图7还可以看出, 模拟结果与实验结果所显示的规律相一致.

3 结论

(1) 改进了前期工作建立的多相元胞自动机(multi-phase cellular automaton, MCA)模型, 模拟以离异共晶方式凝固的球墨铸铁的显微组织演化. 在模型中采用基于局部溶质平衡的方法计算石墨与奥氏体的生长, 将界面平衡成分与实际成分的差值作为生长的驱动力. 并且在计算石墨的生长动力学中考虑了石墨与Fe的密度比. 应用该模型可以模拟出与实验观察吻合良好的离异共晶球墨铸铁凝固显微组织形貌. 模拟的石墨体积分数和平均半径比实验测量结果略高、而比杠杆定律计算值略低, 体现了模拟结果的动力学效应.

(2) 模拟分析了球墨铸铁凝固过程中石墨与奥氏体两相之间相互作用和竞争生长的机理. 结果表明, 奥氏体在液相中的生长可以促进附近石墨的生长, 两相的生长受C扩散控制, 当石墨被奥氏体包围之后, 由于C在奥氏体中的扩散系数远小于其在液相中的扩散系数, 石墨生长速度明显减慢. 相邻的石墨之间也存在相互竞争生长的现象. 此外, 奥氏体与石墨球接触以前以枝晶的形态生长; 当奥氏体包围石墨球之后, 以团状方式生长而失去原先的枝晶形态.

(3) 模拟分析了冷却速率对凝固结束时石墨球的尺寸分布以及平均半径的影响. 结果表明, 当冷却速率较小时, 石墨尺寸分布呈现2个峰值, 这是由于初生石墨和共晶石墨两步形核所产生. 随着冷却速率的增大, 石墨两步形核之间的时间缩短, 初生石墨在共晶石墨形成之前的生长有限, 石墨尺寸分布变为一个峰值, 并且峰值向着半径较小的区域移动. 冷却速率越大, 凝固时间越短, 石墨的平均半径越小. 模拟结果与文献中的实验结果吻合良好.

感谢美国Ohio State University的Doru M. Stefanescu教授关于本工作的有益讨论.

参考文献

[1] Lei F J. *Hot Working Technol*, 2008; 37(13): 125
(雷富军. 热加工工艺, 2008; 37(13): 125)

[2] Zhou J Y. *Color Metallography of Cast Irons*. Beijing: China Machine Press, 2002: 98
(周继扬. 铸铁彩色金相学. 北京: 机械工业出版社, 2002: 98)

chinaXiv:202303.00504v1

ChinaXiv合作期刊

[3] Shi Y F, Xu Q Y, Gong M, Liu B C. *Acta Metall Sin*, 2011; 47: 620
(石玉峰, 许庆彦, 龚 铭, 柳百成. 金属学报, 2011; 47: 620)

[4] Wu M W, Xiong S M. *Acta Metall Sin*, 2010; 46: 1534
(吴孟武, 熊守美. 金属学报, 2010; 46: 1534)

[5] Jiang H X, Zhao J Z. *Acta Metall Sin*, 2011; 47: 1099
(江鸿翔, 赵九洲. 金属学报, 2011; 47: 1099)

[6] Zhang X F, Zhao J Z. *Acta Metall Sin*, 2012; 48: 615
(张显飞, 赵九洲. 金属学报, 2012; 48: 615)

[7] Dai T, Zhu M F, Chen S L, Cao W S, Hong C P. *Acta Metall Sin*, 2008; 44: 1175
(戴 挺, 朱鸣芳, 陈双林, 曹伟生, 洪俊杓. 金属学报, 2008; 44: 1175)

[8] Yang Z R, Sun D K, Pan S Y, Dai T, Zhu M F. *Acta Metall Sin*, 2009; 45: 43
(杨朝蓉, 孙东科, 潘诗琰, 戴 挺, 朱鸣芳. 金属学报, 2009; 45: 43)

[9] Li Z Y, Zhu M F, Dai T. *Acta Metall Sin*, 2013; 49: 1032
(李正扬, 朱鸣芳, 戴 挺. 金属学报, 2013; 49: 1032)

[10] Charbon C, Rappaz M. In: Lesoult G, Lacaze J eds., *Physical Metallurgy of Cast Iron V*. Switzerland: Scitec Publications, 1997: 453

[11] Ruxanda R, Beltran- Sanchez L, Massone J, Stefanescu D M. *Trans AFS*, 2001; 109: 1037

[12] Gurgul D, Burbelko A. *Arch Metall Mater*, 2010; 55: 53

[13] Burbelko A, Fras E, Gurgul D, Kapturkiewicz W, Sikora J. *Key Eng Mater*, 2011; 457: 330

[14] Burbelko A A, Gurgul D, Kapturkiewic W, Górny M. *Mater Sci Eng*, 2012; 33: 012083

[15] Zhao H L, Zhu M F, Stefanescu D M. *Key Eng Mater*, 2011; 457: 324

[16] Zhu M F, Pan S Y, Sun D K, Zhao H L. *ISIJ Int*, 2010; 50: 1851

[17] Zhu M F, Stefanescu D M. *Acta Mater*, 2007; 55: 1741

[18] Stefanescu D M. *Science and Engineering of Casting Solidification*. 2nd Ed., New York: Springer, 2009: 220

[19] Zhu M, Zhang L, Zhao H, Stefanescu D M. *Acta Mater*, 2015; 84: 413

[20] Brown S G R, Williams T, Spittle J A. *Acta Metall Mater*, 1994; 42: 2893

[21] Stefanescu D M, Katz S. In: Vishwanatan S ed., *ASM Handbook*. Vol.15, Materials Park, Ohio: ASM International, 2008: 41

[22] Zheng H L, Sun Y C, Zhang N, Tian X L. *ISIJ Int*, 2010; 50: 1981

[23] Pedersen K M, Tiedje N S. *Mater Charact*, 2008; 59: 1111

[24] Torres J F L. *PhD Dissertation*, University of Alabama, Tuscaloosa, America, 2003

(责任编辑:肖素红)

chinaXiv:202303.00504v1

